

## **Influencia de la lucha antigranizo de Aragón (España) en el contenido en plata del medio ambiente II: Agua, Sedimentos y Biota.**

J. Causapé <sup>(1)</sup>, J. Pey <sup>(2)</sup>, J.M. Orellana-Macías <sup>(1)</sup>, J. Reyes <sup>(1)</sup>

**RESUMEN.** Según la primera parte de este trabajo, la estimación de plata emitida durante los últimos 50 años en el entorno de la laguna de Gallocanta no tiene una correspondencia clara con los niveles detectados en los suelos de la zona. Por ello, el objetivo de esta segunda parte del estudio fue profundizar en la investigación sobre la posible incorporación de plata en aguas, sedimentos y biota siguiendo su trazabilidad.

Para ello, se analizó el contenido en plata de aguas (4 superficiales y 3 subterráneas) y sedimentos (6 barrancos y 3 sondeos en las lagunas de Gallocanta, Campillo de Dueñas y el pantano de Used). Paralelamente, se realizó un ensayo en cinco macetas de trigo con diferentes concentraciones de plata en suelo, que fue analizado y comparado con muestras de paja y trigo del entorno de Gallocanta. Adicionalmente, se analizó el contenido en plata de 7 tejidos de dos ovejas que estuvieron pastando entre 6 y 8 años en zonas con y sin lucha antigranizo.

Los resultados ponen de manifiesto que tras 50 años de emisiones de yoduro de plata a la atmósfera no ha habido una acumulación significativa de plata en zonas deprimidas, que se corresponden con humedales de alto valor ecológico donde desembocan barrancos y afloran manantiales. De hecho, en los sondeos de las lagunas tampoco se identifican picos de plata asociados a la instalación de los primeros generadores de yoduro de plata (1971), el uso constatado de avionetas antigranizo (1984-1985) o la puesta en marcha del Consorcio Antigranizo de Aragón (2001).

---

(1) Instituto Geológico y Minero de España (IGME)

(2) Instituto Pirenaico de Ecología - CSIC

Ello podría estar justificado en parte por la continua exportación de plata a través de las cosechas, principalmente de cereal, ya que se ha observado que tanto el trigo como las ovejas que han pastado en zonas de lucha antigranizo son capaces de asimilar cantidades significativas de plata en sus organismos.

Este proceso ha podido proteger de un progresivo deterioro medioambiental al entorno de la laguna de Gallocanta. Si bien, esta hipótesis debe ser confirmada y cuantificada por nuevas líneas de investigación mediante análisis selectivos de zonas agrícolas y de monte, profundizando en el contenido en plata que pueden fijar especies forestales, y en particular, exportar cultivos de áreas con diferente afección por la lucha antigranizo.

**ABSTRACT.** The silver content in soils in the area in the surroundings of the Gallocanta Lake (Aragón, NE Spain) is lower than expected considering the estimated silver emission during the last 50 years by hail suppression systems. To understand the silver accumulation processes, selected water (4 surface, 3 groundwater), biota and sediment (6 surface sediments and 3 cores from Gallocanta and Campillo de Dueñas Lakes and Used Reservoir) samples have been analyzed. An essay comparing the growth of wheat in pots with different silver iodide concentrations has been carried out. Finally, silver content in 7 tissues from two sheep that graze in areas both with and without hail suppression systems during 6-8 years were analysed.

Our results show that after 50 years of silver iodide emissions to the atmosphere, silver accumulation in the waters and sediments of the lowlands, including some wetlands of high ecological value, has not been significant. Sediment cores did not show any peaks associated to silver emission.

We propose that constant absorption of silver by plants could explain the low concentration in water and sediments. Crops and grass could accumulate the excess silver, as both wheat and sheep are able to absorb significant amounts of silver. These bio - accumulation processes could have helped to avoid a progressive environmental deterioration of the surroundings of the Gallocanta Lake. However, this hypothesis should be corroborated and quantified by further research on the analysis of natural and agricultural areas under the influence of hail suppression systems.

## Introducción

La primera parte de este trabajo (Causapé *et al.*, 2021) apuntó el origen de la plata encontrada en lluvia y suelos a la lucha antigranizo llevada a cabo en la zona de estudio desde principios de los años 70. La estimación de plata emitida en el entorno de la laguna de Gallocanta durante los últimos 50 años fue superior a las concentraciones registradas en sus suelos por lo que es interesante profundizar en la investigación sobre la posible incorporación de plata en aguas, sedimentos y biota que pudieran acumular plata en lugares concretos.

El yoduro de plata es insoluble en agua, pero la plata se puede llegar a disolver en otras formas (WHO, 1996). Las mediciones de plata total en ríos, lagos y estuarios muestran niveles de aproximadamente 0,01 µg/L para áreas vírgenes, no contaminadas y de 0,01–0,1 µg/L en áreas urbanas e industrializadas (Ratte, 1999).

Dependiendo de la dureza y la salinidad del agua, entre el 30-70% de la plata de las aguas superficiales está en forma de partículas en suspensión (Smith y Carson, 1977), hasta el punto de que ríos como el Susquehanna (Pennsylvania, EEUU), contienen en suspensión 25 mg/kg, dando como resultado un transporte estimado de 4,5 toneladas de plata al océano cada año (US EPA, 1980).

Sedimentos de estuarios que reciben residuos mineros o aguas residuales suelen tener más plata (>0,1 mg/kg) que sedimentos no contaminados por actividades humanas (Bloom y Crecilius, 1987). Una vez en el océano, la plata puede permanecer adherida a los sedimentos hasta 100 años (Wingert-Runge y Andren, 1994).

Y si la plata llega al medio ambiente, la biota también es capaz de asimilarla. Fajardo *et al.* (2016) exponiendo bacterias y nematodos (biota edáfica y acuática) a distintos niveles de yoduro de plata, concluyeron que la siembra de nubes repetidamente y aplicada sobre una misma zona podría afectar a la biota, siendo extremadamente tóxica para la microflora en ecosistemas acuáticos (Albright *et al.*, 1972).

Algas marinas acumularon plata de aguas que contenía tan solo 2 µg/l hasta niveles de 58 mg/kg (Sanders *et al.*, 1990). Del mismo modo, las concentraciones de plata en los tejidos aviáres, especialmente en los hígados, se elevaron en las cercanías de áreas contaminadas con metales de la Bahía de San Francisco (Szefer *et al.*, 1993).

A pesar de su posible bioacumulación, desde hace décadas existen estudios descartando que la emisión de yoduro de plata constituya un riesgo para la salud humana (Standler y Vonnegut, 1972; WMA, 2009). No obstante, un signo evidente de adsorción excesiva de plata es la argiria, afección que altera la coloración de la piel y el cabello como consecuencia de la presencia de plata en los tejidos (WHO, 1996).

Normas internacionales de la Organización Mundial de la Salud (OMS, 2003) o de la Unión Europea (DOCE, 2000; DOCE, 2006a, DOCE 2006b) no hacen referencia a

la acumulación de plata en aguas y alimentos, ni la incluyen en sus listados mínimos de contaminantes a controlar. A nivel nacional, las guías para la calidad del agua potable (BOE, 2003) tampoco profundizan en la cuestión, de hecho, cuando se utilizan sales de plata para mantener la calidad bacteriológica del agua de consumo, se pueden tolerar concentraciones de hasta 0,1 mg/L sin riesgo para la salud, que es el nivel secundario máximo de plata establecido por la Agencia Estadounidense Protección del Medio Ambiente (US EPA, 2015).

No obstante, parece un objetivo obligado trazar la movilidad y el destino final de la plata emitida tras décadas de lucha antigranizo.

## Metodología

### Aguas y sedimentos

Para conocer en qué medida la plata pudo ser transportada y acumulada en lugares concretos se muestrearon diez puntos del entorno de la Laguna de Gallocanta (Fig. 1) que abarca ambientes tan diversos como la propia laguna, sus barrancos confluyentes, manantiales e incluso abastecimientos de algunas poblaciones.

En siete de esos diez puntos se recogieron muestras de agua, y en seis, muestras de sedimento. Adicionalmente, se realizaron sondeos de 30 cm de profundidad en sedimentos de la laguna de Gallocanta, el pantano de Used y la laguna de Campillo de Dueñas. Los sondeos fueron muestreados cada medio centímetro hasta los 20 cm de profundidad, pasando entonces a ser muestreados de forma centimétrica.

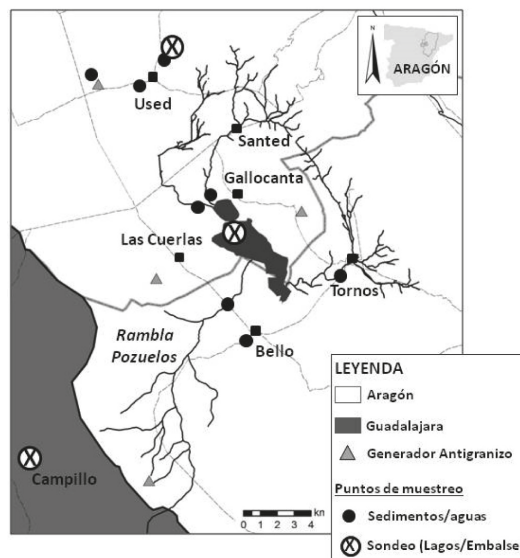


Figura 1. Localización de los puntos de muestreo de aguas y sedimentos.

El contenido en plata de las muestras fue analizado por ICP-MS (Plasma Inductivamente Acoplado-Espectrometría de Masas). Las muestras sólidas fueron previamente digeridas con una mezcla de HF, HNO<sub>3</sub> y HClO<sub>4</sub> concentrados hasta sequedad y disolución del residuo con HNO<sub>3</sub> 6%. Las medidas se realizaron con un equipo Agilent 7500ce con la tecnología ORS (Sistema de Reacción Octopolar) que utiliza el modo de colisión con helio y cuyos procedimientos de medida se basan en el método U.S. EPA 200.8. (1994) para las muestras líquidas y U.S. EPA 6020B (2014) para las sólidas.

El modelo de edad del sondeo de Gallocanta se obtuvo de Burjachs *et al.*, (1996) que mediante isótopos de <sup>137</sup>Cs y <sup>210</sup>Pb encontraron una tasa de sedimentación continua para los 45 cm superiores de 0,3 cm/año. Para el pantano de Used, la base del sondeo coincidió con el sustrato del fondo del pantano construido en 1983, asignando al sondeo una tasa de sedimentación de 1,1 cm/año. El modelo de edad del sondeo de la laguna de Campillo se obtuvo integrando dataciones con <sup>14</sup>C, <sup>137</sup>Cs y <sup>210</sup>Pb con la que se obtuvo una tasa de sedimentación similar a la de la laguna de Gallocanta.

**Biota**

Trigo

Con el fin de estudiar la posible absorción de plata por los cultivos de la zona de estudio se efectuó un ensayo en cinco macetas de trigo (Tabla 1). Para ello se partió de 15 kg de suelo al que se aplicaron diferentes cantidades del producto utilizado por los sistemas antigranizo consistente en yoduro de plata disuelto en acetona a una concentración de 420 g/L.

Dada la dificultad de homogeneizar la mezcla suelo-producto antigranizo, las concentraciones teóricas fueron contrastadas con analíticas de laboratorio para que al menos las concentraciones resultantes confirmaran la gradación ascendente en concentración de plata del ensayo.

| MACETA | Suelo | Producto Antigranizo |     | Suelo (Teórico/Análisis) |       |
|--------|-------|----------------------|-----|--------------------------|-------|
|        | kg    | AgI (mg/L)           | ml  | Ag (mg/kg)               |       |
| 1      | 15    | 420                  | 0,1 | 1                        | 4,0   |
| 2      | 15    | 420                  | 0,5 | 6                        | 5,5   |
| 3      | 15    | 420                  | 1,0 | 13                       | 24,9  |
| 4      | 15    | 420                  | 3,0 | 38                       | 71,4  |
| 5      | 15    | 420                  | 5,0 | 64                       | 104,8 |

Tabla 1. Parámetros del ensayo de contenido de plata en macetas de trigo.

Una vez desarrolladas, las plantas se analizaron junto a otra muestra de paja y trigo en grano producido en el entorno de la laguna de Gallocanta, con el fin de comparar sus contenidos en plata y hacer una estimación de la cantidad de plata exportada en las cosechas.

Las muestras de suelo de las macetas se trataron con agua regia para su posterior medida por absorción atómica. Para analizar las muestras de paja y trigo se realizó una digestión tras cenizas con ácido clorhídrico que también fue medida por absorción atómica.

### Ovejas

Con el fin de saber si la plata emitida en la lucha antigranizo puede llegar a grandes vertebrados se muestreó el contenido de plata de dos ovejas que pudieran llevar entre 6 y 8 años pastando en zonas con y sin lucha antigranizo.

Los tejidos de las ovejas analizados fueron el hígado, riñón, bazo, pelaje, cascos, hueso y magro con el objetivo de detectar también en que parte de su organismo pudiera haber una mayor acumulación de plata de cara a la realización de futuros estudios con un número mayor y más diverso de animales.

Una vez liofilizadas, las muestras fueron calcinadas a 500 °C. Las cenizas fueron disueltas en ácido clorhídrico para la determinación de la plata por absorción atómica en el extracto de cenizas.

## Resultados

### Aguas y sedimentos

Los contenidos de plata en las muestras de agua analizadas (Tabla 2) no se corresponden con valores tan bajos como los que se pueden encontrar de forma natural en zonas no afectadas (0,01 µg/litro; Ratte, 1999), pero están por debajo de 0,1 mg/L, nivel secundario máximo definido por la US EPA (2015).

El propio agua de un aljibe junto al generador antigranizo de Used tan sólo presentó una concentración de 0,06 µg/L, si bien, este aljibe se encontraba lleno tras las lluvias precedentes a la fecha del muestreo, lo que pudo diluir su concentración.

El pantano y la Fuente Vieja de Used, que se alimentan respectivamente de aguas superficiales y subterráneas de la sierra de Santa Cruz presentaron concentraciones superiores (0,31 y 0,35 µg/L) y del mismo orden de magnitud a la obtenida en el agua para consumo humano de su población (0,21 µg/L).

Sin embargo, el agua para consumo humano de Bello, con graves problemas de contaminación por nitratos de su pozo de abastecimiento (Orellana et al., 2020), no detectó plata por encima del límite de detección (< 0,05 µg/L).

Así pues, el agua continuamente renovada como la del barranco de Santed, con origen en los materiales paleozoicos en la cercana sierra de Santa Cruz y que drena directamente a la laguna endorreica de Gallocanta, presentó una menor concentración en plata ( $0,09 \mu\text{g/L}$ ). Estas concentraciones pueden ser acumuladas en la propia laguna, que presentó, con diferencia, la mayor concentración ( $1,60 \mu\text{g/L}$ ). En la fecha del muestreo, el nivel de agua en la laguna era muy bajo, su extensión reducida y, por lo tanto, se podía encontrar muy evapoconcentrada.

Tabla 2. Concentraciones de plata en agua y sedimentos del entorno de Gallocanta

| Punto de muestreo     | Agua                   | Sedimento  |
|-----------------------|------------------------|------------|
|                       | Ag ( $\mu\text{g/L}$ ) | Ag (mg/kg) |
| Aljibe Generador Used | 0,06                   | ----       |
| Fuente Vieja Used     | 0,35                   | ----       |
| Pantano de Used       | 0,31                   | 0,14       |
| Abastecimiento Used   | 0,21                   | ----       |
| Abastecimiento Bello  | < 0,05                 | ----       |
| Barranco de Santed    | 0,09                   | 0,17       |
| Barranco de Used      | ----                   | 0,17       |
| Barranco de Tornos    | ----                   | 2,89       |
| Rambla Pozuelos       | ----                   | 0,13       |
| Laguna Gallocanta     | 1,60                   | 0,16       |

En cuanto a los análisis en los sedimentos de los barrancos que confluyen a la laguna de Gallocanta, de la propia laguna y del pantano de Used, presentaron valores superiores a los contenidos de plata en los suelos de la zona (Causapé *et al.*, 2021) y siempre mayores a  $0,1 \text{ mg/kg}$ , límite a partir del cual Bloom y Crecilius (1987) consideran contaminados por actividades humanas. Sensiblemente mayor fue la concentración del sedimento del barranco de Tornos ( $2,89 \text{ mg/Kg}$ ), que demostraría la existencia de transporte de plata.

En cuanto a los sondeos (Fig. 2), el de la laguna de Gallocanta presentó cantidades de plata inferiores al límite de detección ( $< 0,1 \text{ mg/kg}$ ) a lo largo de todo su perfil, salvo en los centímetros 21 y 24 de profundidad ( $0,14 \text{ mg/kg}$ ). En el sondeo de la laguna de Campillo tan sólo cinco muestras presentaron valores por debajo de  $0,1 \text{ mg/kg}$ , si bien el resto de muestras estuvieron cercanas al mismo, menos los centímetros 25 ( $0,40 \text{ mg/kg}$ ) y 27 ( $0,24 \text{ mg/kg}$ ) del sondeo. Por último, en el sondeo del pantano de Used todas las muestras superan ligeramente el límite de detección, y tienen una escasa variabilidad a lo largo de la profundidad del sondeo (entre  $0,1$  y  $0,15 \text{ mg/kg}$ ).

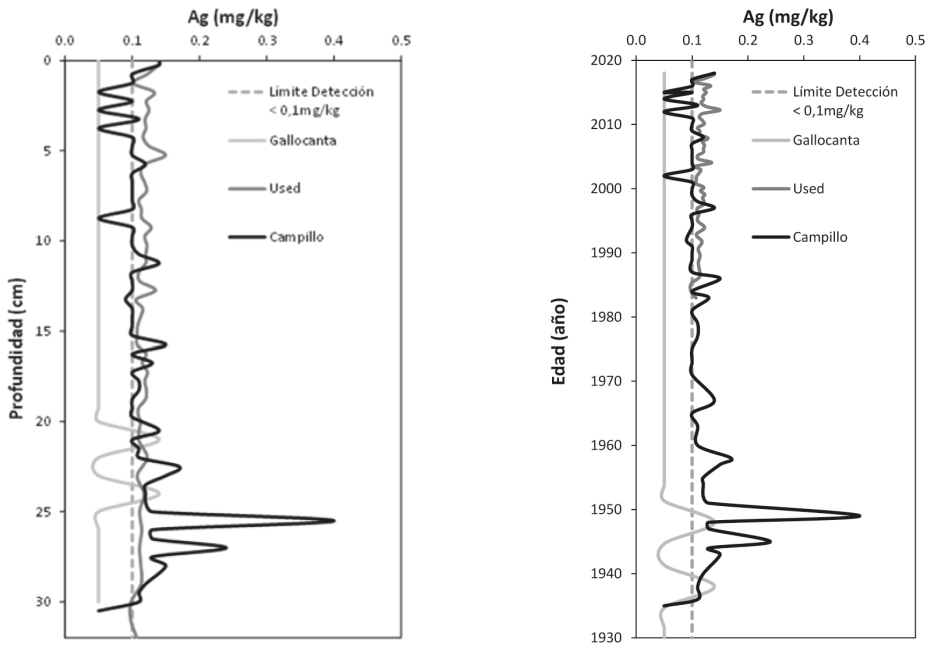


Figura 2. Contenido de plata en los sondeos de la laguna de *Gallocanta*, pantano de Used y laguna de Campillo de Dueñas respecto a la profundidad y edad de su sedimento.

Representadas las concentraciones de plata en el sedimento frente a los respectivos modelos de edad de los tres sondeos, no se identifican picos asociados a épocas en las que hubo eventos significativos de la lucha antigranizo, como la instauración de los primeros generadores antigranizo (1971), años en los que existe constancia de lucha antigranizo con avionetas (1984-1985), o con la puesta en marcha del Consorcio Antigranizo de Aragón y su red de generadores de yoduro de plata (2001).

Los niveles de plata a lo largo del tiempo son del mismo orden de magnitud a los registrados en los suelos del área de estudio (Causapé *et al.*, 2021) y con escasa variabilidad, destacando que el pantano de Used presentó concentraciones superiores a las de Campillo de Dueñas donde no se realiza lucha antigranizo desde finales de los 70, y esta a su vez, niveles superiores a los de la laguna de Gallocanta. Teniendo en cuenta las diferentes tasas de sedimentación (1,1 vs 0,3 cm/año), la plata que llegó al Pantano de Used fue varias veces superior a las otras lagunas muestreadas.

Los únicos picos reseñables de concentración de plata son los asociados a 1945 y 1949 en la laguna de Campillo y que tienen cierto paralelismo en el sondeo de Gallocanta (Fig. 2). Con la información disponible no es posible su justificación

ya que en aquella época no hay constancia de emisiones a la atmósfera de yoduro de plata y será necesario un estudio específico para averiguar si esas mayores concentraciones de plata pueden estar asociadas, por ejemplo, a incrementos en otros iones.

**Biota**

El ensayo realizado mostró que las plantas de trigo tuvieron problemas en su desarrollo conforme el contenido de plata en el suelo fue aumentando, hasta el punto de que las dos macetas con más contenido en plata no consiguieron nacer, tal y como advierte US EPA (1980) del efecto sobre la germinación. No obstante, la plata en suelos de la zona de estudio fue muy inferior por lo que hacer una estimación de la posible pérdida de producción requeriría de un ensayo agronómico riguroso.

Lo que si se evidenció es que cuanto mayor contenido en plata tuvo el suelo menor vigor tuvo la planta y mayor concentración de plata tuvo su paja (Tabla 3), sin que fuera posible analizar el grano por no llegar a espigar. En consonancia con la menor plata de los suelos del entorno de Gallocanta, la muestra de paja de la zona de estudio tuvo 0,19 mg/kg mientras que sus granos de trigo 0,15 mg/kg.

Tabla 3. Contenido de plata en suelo y paja en el ensayo con cinco macetas de trigo.

| 1 mg/kg suelo                                                                        | 6 mg/kg suelo                                                                       | 13 mg/kg suelo                                                                      | 38 mg/kg suelo                                                                      | 64 mg/kg suelo                                                                        |
|--------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|
|   |  |  |  |  |
|  |                                                                                     |                                                                                     |                                                                                     |                                                                                       |
| 1,6 mg/kg paja                                                                       | 2,5 mg/kg paja                                                                      | 7,4 mg/kg paja                                                                      | -                                                                                   | -                                                                                     |

En cuanto a los tejidos de las ovejas, la que pastó toda su vida en la zona de lucha antigranizo presentó un mayor contenido de plata en los siete tejidos analizados (Tabla 4), encontrándose la mayor acumulación en el hígado, órgano que ya ha sido identificado como máximo acumulador de plata en otros animales (Szefer *et al.*, 1993).

Tabla 4. Contenido de plata en siete tejidos de dos ovejas (6-8 años) que pastaron en áreas de lucha y no lucha antigranizo con generadores de yoduro de plata.

|                | Hígado                             | Riñón | Bazo  | Pelo  | Cascos | Hueso | Magro |
|----------------|------------------------------------|-------|-------|-------|--------|-------|-------|
|                | -----Ag (mg/kg materia seca) ----- |       |       |       |        |       |       |
| Antigranizo    | 10,2                               | 2,7   | 0,3   | 1,7   | 1,0    | 1,7   | 1,9   |
| No Antigranizo | 0,5                                | 0,3   | < 0,1 | < 0,1 | 0,8    | 1,6   | 1,9   |

## Discusión y conclusiones

Las concentraciones de plata en las aguas de la zona de estudio se encontraron en valores superiores a 0,01 µg/L, que es el rango que identificó Ratte (1999) para áreas vírgenes, si bien, muy lejos de alcanzar los 100 µg/L que, por ejemplo, establece la US EPA (2015) como nivel secundario máximo de plata.

Los niveles de plata en los sedimentos analizados fueron ligeramente superiores a los encontrados por Causapé *et al.* (2021) en suelos del área de estudio alejados de los generadores antigranizo. Ello apunta a la movilización de la plata fundamentalmente en suspensión y/o arrastre, tal y como señalan Smith y Carson (1977).

No obstante, la plata parece no llegar en grandes cantidades a las áreas deprimidas de la zona de estudio. Generalmente, las concentraciones en los sedimentos de la laguna de Gallocanta, Campillo de Dueñas y el pantano de Used, están en torno a los 0,1 mg/kg, límite considerado como afectados por actividad humana (Bloom y Crecilius, 1987).

Por otra parte, en el análisis de sus sondeos no se observan reacciones asociadas a episodios históricos en la lucha antigranizo, como la instalación de los primeros generadores de yoduro de plata (1971), el uso constatado de avionetas antigranizo (1984-1985) o la puesta en marcha del Consorcio Antigranizo de Aragón (2001-2017).

Uno de los motivos por los que no se detectó una gran acumulación de plata en las áreas deprimidas se pudo deber a la gran dispersión que las emisiones alcanzan en la atmósfera, que pueden llegar a cientos de kilómetros (Freeman, 1979; Jing *et al.* 2016), lo que acaba arrastrando parte de la plata emitida a zonas alejadas de las áreas objetivo.

Este hecho se constata en los niveles de plata registrados en el sondeo de la laguna de Campillo de Dueñas, localizada en la provincia de Guadalajara (sin lucha antigranizo desde finales de los 70), que presentó concentraciones de plata superiores a las registradas en la laguna de Gallocanta.

Por otra parte, la plata en los suelos del ensayo con macetas de trigo llegó a ser tóxica para el cultivo, mermando su producción, e incluso afectando gravemente a su nascencia, eso sí, en concentraciones muy superiores a las registradas en el entorno de Gallocanta.

Adicionalmente, las analíticas en los tejidos de ovejas han mostrado que la plata procedente de la lucha antigranizo también puede llegar a grandes vertebrados herbívoros a través de los pastos, acumulándose principalmente en el hígado.

En este sentido, Younger y Crookshank (1978) quienes sometieron a ovejas jóvenes a diferentes dosis diarias de yoduro de plata en cápsulas, llegaron igualmente al resultado de una mayor acumulación en las ovejas con mayores dosis de plata aplicadas (168 mg/día durante 86 días) y también concentrando la plata principalmente en el hígado (17,4 mg/kg).

Es destacable que estos autores no encontraron señales clínicas de toxicidad en las ovejas sometidas al ensayo por lo que apoya el trabajo de Cooper y Jolly (1970) en el que afirman que peces, invertebrados y microorganismos son más sensibles a la toxicidad con plata que el hombre y otros vertebrados.

Si como se estimó en Causapé et al. (2001), la plata emitida durante los últimos 50 años no está completamente justificada por el contenido en los suelos, y tampoco acumulada en los sedimentos de zonas deprimidas, parte de la diferencia pudiera estar en la exportación de plata a través de las cosechas.

Así pues, se ha demostrado que el trigo, cultivo predominante en la zona de estudio, es capaz de absorber plata, de forma tan significativa, que según las concentraciones en grano de trigo (0,15 mg/kg) y paja (0,19 mg/kg) de la zona de estudio y para unos rendimientos de 4000 y 2000 kg/ha respectivamente, posibilitarían la exportación de 0,10 mg/m<sup>2</sup>·año, lo que prácticamente coincide con la deposición atmosférica cuantificada por Causapé et al., (2021) para el periodo 2017-2018 en la zona de estudio.

Estos procesos han podido quedar reflejados en el mayor contenido de plata en los sedimentos del pantano de Used en comparación con la laguna de Gallocanta. Y es que, mientras el pantano de Used es alimentado por escorrentías provenientes de la sierra y alejadas de las zonas agrícolas, el área de recarga de la laguna de Gallocanta está mayoritariamente ocupada por grandes extensiones de cultivos de cereal.

En la sierra predomina el monte bajo cuya masa forestal también podrían ser capaz de fijar plata, especialmente las especies arbóreas de gran porte y años de vida, no

obstante, el área agrícola podría estar actuando además de asimilador como exportador de plata, lo cual también podría justificar la menor concentración del abastecimiento de Bello frente a los manantiales de la sierra, sabiendo que el alto contenido en nitrato del pozo de Bello delata su recarga con lixiviados agrícolas.

En definitiva, la plata emitida desde hace décadas en el entorno de la laguna de Gallocanta puede no haber alcanzado mayores concentraciones en suelos ni sedimentos de humedales de alto valor ecológico, debido a que parte de ella podría estar siendo fijada en la biota, y en particular, asimilada por los cultivos y exportada a través de sus cosechas.

Esta hipótesis debe ser confirmada por nuevas líneas de investigación mediante análisis selectivos de zonas agrícolas y de monte, profundizando en el contenido en plata que pueden llegar a fijar especies forestales, y especialmente, exportar cultivos de áreas con diferente afección por la lucha antigranizo.

## Agradecimientos

Este estudio ha sido posible gracias a la financiación del proyecto AgroSOS (PID2019-108057RB-I00; Ministerio de Ciencia e Innovación - Fondos Feder UE) así como al contrato predoctoral concedido por el Gobierno de Aragón a J.M. Orellana-Macías (BOA 20/07/2017). Un especial agradecimiento a Fernando Barreiro, Elena Royo, Raquel López, M<sup>a</sup> Pilar Mata, Jesús Reyes, Francisco Iguacel, Susana Bayarri, y María Sánchez por su colaboración y asesoramiento en diferentes partes del estudio.

## Referencias

- Albright, L. J, Wentworth, J. W., and Wilson, E. M.: 1972. Technique for measuring metallic salt effects upon the indigenous heterotrophic microflora of a natural water. *Water Resources*. 6(12):1589-1596.
- Bloom N.S., Crecelius E.A. 1987. Distribution of silver, mercury, lead, copper and cadmium in central puget sound sediments. *Marine Chemistry*. 21(4):377-390.
- BOE 2003. Real Decreto 140/2003, de 7 de febrero, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano. 45:7228-7245.
- Burjachs F., Rodó X., Comín F. 1996. Gallocanta: Ejemplo de secuencia palinológica en una laguna efimera. XI Simposio de Palinología. *Estudios Palinológicos* 25-29. Universidad de Alcalá de Henares.
- Causapé J., Pey J., Orellana-Macías J.M, Reyes J. 2021. Influencia de la lucha antigranizo de Aragón (España) en el contenido en plata del medio ambiente I: Precipitación y Suelos. *Science of the Total Environment*. En Revisión.
- Cooper CF., Jolly WC. 1970. Ecological effects of silver iodide and other weather modification agents. A review. *Water Resources. Research*. 6:88-98.
- Diario Oficial de la Unión Europea. 2000. Directiva 2000/60/CE del Parlamento Europeo y del Consejo, por la que se establece un marco comunitario de actuación en el ámbito de la política de aguas.

- Diario Oficial de la Unión Europea. 2006a. Directiva 2006/118/CE del Parlamento Europeo y del Consejo relativa a la protección de las aguas subterráneas contra la contaminación y el deterioro. L372:19-31.
- Diario Oficial de la Unión Europea. 2006b. Reglamento No 1881/2006 por el que se fija el contenido máximo de determinados contaminantes en los productos alimenticios. L364:5-24
- Fajardo C., Costa G., Ortiz L.T., Nande M., Rodríguez-Membibre M.L., Martín M., Sánchez-Fortún S. 2016. Potential risk of acute toxicity induced by AgI cloud seeding on soil and freshwater biota. *Ecotoxicology and Environmental Safety* 133:433–441.
- Freeman R. 1979. Ecological kinetics of silver in an alpine lake ecosystem. In: Marking L, Kimerle R, eds. *Aquatic toxicology. Proceedings of the 2<sup>nd</sup> annual symposium on aquatic toxicology*. Philadelphia, PA, American Society for Testing and Materials, pp. 342–358 (ASTM Special Technical Publication 667).
- Jing X., Geerts B., Boe B. 2016. The Extra-Area Effect of Orographic Cloud Seeding: Observational Evidence of Precipitation Enhancement Downwind of the Target Mountain. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*. 55:1409–1424. doi: 10.1175/JAMC-D-15-0188.1.
- Orellana-Macías J.M., Merchán D., Causapé J. 2021. Evolution and assessment of a nitrate vulnerable zone over 20 years: Gallocanta groundwater body (Spain). *Hydrogeology Journal* 28:2207–2221. <https://doi.org/10.1007/s10040-020-02184-0>.
- Organización Mundial de la Salud. OMS. 2003: Silver in drinking-water. Documento de referencia para la elaboración de las Guías de la OMS para la calidad del agua potable. Ginebra (Suiza), Organización Mundial de la Salud.
- Ratte H. 1999. Bioaccumulation and toxicity of silver compounds: A review. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 18(1):89–108.
- Sanders J., Abbe G., Riedel G. 1990. Silver uptake and subsequent effects on growth and species composition in an estuarine community. *Science of The Total Environment*. 97–98: 761–769
- Smith I., Carson B. 1977. Trace metals in the environment. Volume 2. Silver. Ann Arbor, MI, Ann Arbor Science Publishers, 469 pp.
- Standler R.B., Vonnegut B. 1972. Estimated possible effects of AgI cloud seeding on human health. *Journal of applied meteorology*. 11: 1388–1991.
- Szefer P., Pempkowiak J., Skwarzec B., Bojanowski R., Holm E. 1993. Concentration of selected metals in penguins and other representative fauna of the Antarctica. *The Science of the Total Environment*, 138:281–288.
- United States Environmental Protection Agency. US EPA. 1980. Ambient water quality criteria for silver. Washington, DC, US EPA (440/5-80-071).
- United States Environmental Protection Agency. US EPA. 1994. “Method 200.8: Determination of Trace Elements in Waters and Wastes by Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry,” Revision 5.4. Cincinnati, OH
- United States Environmental Protection Agency. US EPA. 2014. “Method 6020B (SW-846): Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry,” Revision 2. Washington, DC.

- United States Environmental Protection Agency. US EPA (2015). EPA Secondary Maximum Contaminant Levels: A Strategy for Drinking Water Quality and Consumer Acceptability. Web Report #4537
- Weather Modification Association 2009. Position Statement on the Environmental Impact of Using Silver Iodide as a Cloud Seeding Agent. Environmental Impact of Using Silver Iodide.
- Wingert-Runge B, Andren A. 1994. Desorption behavior of silver from natural sediments under freshwater and marine conditions. In: Andren A, Bober T, eds. Transport, fate, and effects of silver in the environment. Proceedings of the 2<sup>nd</sup> international conference. Madison, WI, University of Wisconsin Sea Grant Institute. 89–93.
- World Health Organization 1996. Health criteria and other supporting information. Guidelines for drinking-water quality. 2<sup>nd</sup> ed. Vol. 2.
- Younger L., Crookshank R. 1977. Chronic exposure of sheep to Silver Iodide. Water, Air, and Soil Pollution. 9(3): 281-287.